



角度分解光電子分光による点および線ノードトポロジカル半金属の研究

著者	高根 大地
号	92
学位授与機関	Tohoku University
学位授与番号	理博第3318号
URL	http://hdl.handle.net/10097/00131717

論文内容要旨

(NO. 1)

氏 名	高根 大地	提出年	令和 3 年
学位論文の 題 目	角度分解光電子分光による点および線ノードトポロ ジカル半金属の研究		

論文目次

第 1 章 序論

第 2 章 光電子分光

第 3 章 スピン分解 ARPES 用深紫外レーザー光源の開発

第 4 章 線ノード半金属 HfSiS の光電子分光

第 5 章 線ノード半金属 CaAgAs の光電子分光

第 6 章 線ノード金属 AlB₂ の光電子分

第 7 章 点ノード半金属 CoSi の光電子分光

第 8 章 総括

発表論文

国際学会発表

国内学会・シンポジウム発表

受賞

謝辞

論文要旨

1 はじめに

トポロジカル半金属は、ブリルアンゾーン中において価電子帯と伝導帯の交点ギャップレスな縮退ノードを有し、非自明なバルクトポロジを持つ物質系である。なかでも、縮退ノードが 1 次元的に伸びる線ノードや 3 つ以上のバンドで構成される多重縮退ノードは、トポロジカル絶縁体やディラック・ワイル半金属とも異なる新たな物質として注目されている。しかし、その電子状態が確立された物質が未だ少なく、特にトポロジカルな表面状態の性質については未解明である。本研究では、新たな 3 次元縮退ノードを持つ物質の実証とトポロジの解明を目的として、線ノード半金属 HfSiS, CaAgAs, AlB₂ 及び、多重縮退点ノード半金属 CoSi について高分解能角度分解光電子分光(ARPES)による研究を行った。また、トポロジカル半金属の電子状態の研究に並行してスピン分解角度分解光電子分光用高輝度レーザー光源の開発を行った。

2 研究内容

2.1 線ノード半金属候補物質 HfSiS, CaAgAs, AlB₂の角度分解光電子分光

線ノード半金属は、バルクに線形バンドで構成される 1 次元縮退線(線ノード)を持つ物質相である。

新たなトポロジカル半金属として提案されたが、候補物質が少なく、特にその表面状態は未解明である。本研究では、 HfSiS 、 CaAgAs 、 AlB_2 に対して ARPES による電子状態観測を行い、各物質における線ノードの実証を行った。

HfSiS は鉄系超伝導体 LiFeAs と同型の結晶構造をもつ層状物質である。ARPES によって、2つのダイヤモンド型の等エネルギー面が存在し、これが互いに逆向きの線形分散によって構成されることを見出した。 HfSiS 結晶がもつ映進対称性を考慮すると、スピン軌道相互作用を無視した場合に、観測された線型なバルクバンドの交点は線ノードを形成していると考えられる。さらに、フェルミ準位 (E_F) 近傍では Hf と Si のバンドをつなぐような分散を示す新たなバンド X1 を観測した。X1 はバルクバンド計算で再現されないことから、表面状態に帰属される。表面バンド X1 の詳細を明らかにするために、 E_F 極近傍で ARPES 測定を行った結果、 HfSiS の表面状態は、X1 に加えてそれと対称に分散する線形バンド X2 から構成され、2つのバンドの交差点が Γ M 軸上で縮退する「ディラックノードアーク」を形成することを見出した。X1, X2 で構成される表面状態はバルク線ノードの射影をつないでおり、線ノード半金属のバルクトポロジを反映した表面状態であると考えられる。

次に、鏡映対称性に保護された線ノードの存在を実証するために、 CaAgAs における ARPES 実験を行った。 CaAgAs の結晶構造は c 軸に垂直な鏡映面を持ち、本対称性に保護された線ノードをもつことが期待される。 CaAgAs を $(11\bar{2}0)$ 面でへき開し、バルク敏感な軟 X 線を用いた ARPES 実験を行った。その結果、 Γ KM 面では円環型、 Γ AHK 面では点状フェルミ面の形成を示唆する E_F 上での ARPES 強度が観測された。このフェルミ面が線形バンドから構成されていることから、 CaAgAs は鏡映対称性に保護された線ノードを持つと結論した。同時に、 CaAgAs は1つの線ノード由来の線形バンドのみがフェルミ面を構成しており、線ノード特有の伝導物性探索の舞台としても最適であることを明らかにした。

さらに、直線型線ノードとスピン軌道相互作用の小さい軽元素化合物における線ノードの実現の可能性を明らかにするために、 AlB_2 における ARPES 実験を行った。 AlB_2 は B 原子のハニカム格子の面間に Al 原子が挿入された構造を持つ層状物質である。 AlB_2 の ARPES 実験から、K 点及び H 点付近において B の π バンド由来の線形バンドが交差する様子が観測された。この縮退構造が KH 軸上で保たれることから、 AlB_2 はディラック線ノードを持つと結論した。

以上のように、 HfSiS 、 CaAgAs 、 AlB_2 に対する ARPES 実験によって、映進・鏡映・AB 副格子対称性に保護された線ノードの存在を実証した。同時に、線ノード間をつなぐ表面状態を HfSiS において観測した。

2.2 多重縮退点ノード半金属候補物質 CoSi の角度分解光電子分光

最近、スピン1励起点ノードを持つ物質相が新たなトポロジカル半金属として提案された。スピン1励起点ノードは線形バンドと平坦バンドで構成される3重縮退点ノードであり、チャーン数2で特徴付けられる。本研究では、 CoSi における ARPES によって表面・バルク電子状態を決定し、スピン1励起点ノードとトポロジカル表面状態の実証を行った。

CoSi は空間群198に属するカイラルな結晶構造を持つ。3次元バルク電子状態決定のために、バルク敏感な高エネルギー光を用いた ARPES 測定を行った結果、 Γ 点においてスピン1励起点を、R 点において2重ワイル点と呼ばれる4本の線形バンドで構成される縮退点ノードを見出した。また、表面敏感な真空紫外光を用いた ARPES 実験によって Z 字型フェルミ面をもつ表面状態を見出した。この状態はスピン1励起点の射影点と2重ワイル点の射影点をつなぐことから、縮退ノードのチャーン数を反映したフェルミアーク表面状態であると結論した。

2.3 スピン分解 ARPES 用深紫外レーザー光源の開発

これまで研究室内光源としては希ガス放電管が広く用いられてきた。一方で近年、希ガス放電管比べて、高輝度、微小スポット、高分解能を実現可能なレーザー光源が注目されている。本研究では研究室内スピン分裂 ARPES 装置用光源として高繰り返し深紫外レーザー光源の開発とその光源をディフレックター電子レンズとミニモット型スピン検出器を備えたスピン分解 ARPES 装置と組み合わせた際の性

(No. 3)

能評価を行った。立ち上げた深紫外レーザー光源は Ti : Sapphire レーザーの 4 倍波を用いることで波長 210 nm~250 nm において 24 時間以上安定した発振を示した。真空槽入射直前に 1 mW 程度と高い出力を示しており、高強度レーザーを用いることによってスピン分解 ARPES 測定の測定時間が 30 倍以上短縮されるなど大幅な測定効率の改善が達成された。同時に試料冷却機構の改善も行い、測定中の試料位置の安定性の改善を行ったことにより、レーザーの微小スポットを活かしたドメイン分割 ARPES 測定も可能となった。

3 まとめ

ディラック・ワイル半金属に続く新たな縮退ノードを持つトポロジカル半金属の実証を目的として、高分解能 ARPES により HfSiS, CaAgAs, AlB₂, CoSi における電子構造の研究を行った。その結果、各物質において結晶対称性に依存した様々な点および線ノードが存在することを明らかにした。また、HfSiS では線ノードを繋ぐ表面状態を、CoSi では縮退ノードの射影点をつなぐフェルミアーク表面状態を見出した。また、スピン分解角度分解光電子分光用高輝度レーザー光源の開発を並行して行い、高輝度で安定した光源の開発に成功した。

論文審査の結果の要旨

トポロジカル絶縁体の発見を契機にして、新しいトポロジカル物質の探索が大きく進展している。トポロジカル物質のなかでもトポロジカル半金属は、ブリルアンゾーン中において価電子帯と伝導帯の交点が縮退ノードを有し非自明なトポロジをもつ興味深い物質系である。しかし、その電子状態が確立された例は極めて少ない。本研究では、新たなトポロジカル半金属の実証とトポロジに関わる電子構造の解明を目的として、角度分解光電子分光(ARPES)によって HfSiS , CaAgAs , AlB_2 及び CoSi の電子状態を明らかにした。さらに、ARPES 用の真空紫外レーザー光源の開発も行った。

本論文では、まず、1 次元縮退線(線ノード)を持つ半金属の理論予測に着目し、候補物質である HfSiS , CaAgAs , AlB_2 における線ノードの実証を行った。 HfSiS では、結晶の映進対称性によって保護されたダイヤモンド型フェルミ面の観測により、この物質が 2 つの線ノードによって特徴付けられる線ノード半金属であることを実証した。加えて、特異な表面バンド「ディラックノードアーク」を観測し、それが非自明なトポロジに起因することを示唆した。また、 CaAgAs における軟 X 線 ARPES によってリング形フェルミ面の観測に成功し、フェルミ面を構成するバンドが線型分散をもつことも明らかにした。この結果から、 CaAgAs は鏡映対称性に保護された線ノードをもつことを示唆した。さらに、 AlB_2 の ARPES 実験により、 K-H 軸上で B の π バンド由来の線ノードを見出した。以上の結果は、線ノード半金属と呼ばれる新しいカテゴリーのトポロジカル物質の存在を明確に示すものである。

本論文ではさらに、新しい種類の「点」ノードをもつ半金属 CoSi の電子構造解明も行い、よく知られたディラック・ワイル準粒子とは異なる、スピン 1 励起・2 重ワイル準粒子と呼ばれる新しい準粒子の実証にも成功した。さらに、これらの準粒子バンドをつなぐフェルミアーク表面状態の存在を明らかにした。これらの結果は、結晶の対称性によって固体内で多彩なノーダル準粒子が現れることを示したものであり、トポロジカル物質科学の進展に大きく寄与するものである。

以上の成果は、ARPES による電子状態観測の観点から対称性に着眼した新型トポロジカル半金属探索の有効性を実証したものであり、高根大地が自立して研究活動を行うのに必要な高度の研究能力と学識を有することを示している。したがって、高根大地提出の博士論文を、博士(理学)の学位論文として合格と認める。